

Translation

Rec'd PCT/PTO 25 MAY 2005  
PCT/EP2003/013170

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference B02/0592PC	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/EP2003/013170	International filing date (day/month/year) 24 November 2003 (24.11.2003)	Priority date (day/month/year) 26 November 2002 (26.11.2002)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C07C 209/16		
Applicant BASF AKTIENGESELLSCHAFT		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
2. This REPORT consists of a total of <u>8</u> sheets, including this cover sheet.  <input checked="" type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).  These annexes consist of a total of <u>2</u> sheets.
3. This report contains indications relating to the following items:  I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report II <input type="checkbox"/> Priority III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability IV <input checked="" type="checkbox"/> Lack of unity of invention V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application VIII <input type="checkbox"/> Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 25 June 2004 (25.06.2004)	Date of completion of this report 23 February 2005 (23.02.2005)
Name and mailing address of the IPEA/EP  Facsimile No.	Authorized officer  Telephone No.

# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International Application No.  
PCT/EP2003/013170

## I. Basis of the report

### 1. With regard to the elements of the international application:\*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:  
 pages \_\_\_\_\_ 1-8 \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☒ the claims:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_ 1-10 \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_ 21 January 2005 (21.01.2005)
- ☐ the drawings:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing part of the description:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

### 2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

### 3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

### 4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

### 5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International Application No.

PCT/EP2003/013170

## IV. Lack of unity of invention

1. In response to the invitation to restrict or pay additional fees the applicant has:

- ☐ restricted the claims.
- ☒ paid additional fees.
- ☐ paid additional fees under protest.
- ☐ neither restricted nor paid additional fees.

2. ☐ This Authority found that the requirement of unity of invention is not complied with and chose, according to Rule 68.1, not to invite the applicant to restrict or pay additional fees.

3. This Authority considers that the requirement of unity of invention in accordance with Rules 13.1, 13.2 and 13.3 is

- ☐ complied with.
- ☐ not complied with for the following reasons:

4. Consequently, the following parts of the international application were the subject of international preliminary examination in establishing this report:

- ☒ all parts.
- ☐ the parts relating to claims Nos. \_\_\_\_\_

**Supplemental Box**

(To be used when the space in any of the preceding boxes is not sufficient)

Continuation of: IV.

**Lack of unity of invention**

This Examining Authority has determined that the international application contains multiple inventions or groups of inventions which are not linked by a single general inventive concept (PCT Rule 13.1), as follows:

I. Claims 1 to 4, 9, 10: A method and a reactor for producing alkylamines by reacting C1-C4 alkanols with ammonia in a fixed bed in the presence of a shape-selective fixed-bed catalyst, characterized in that the fixed bed is a single coherent fixed bed and pipes through which coolant is guided in order to regulate the temperature of the fixed bed are provided within this fixed bed.

II. Claim 5: A method of producing alkylamines by reacting C1-C4 alkanols with ammonia in a fixed bed in the presence of a shape-selective fixed bed catalyst, characterized in that some of the feed material is fed to the fixed bed at a location at which there is already reacted reaction mixture which has a higher temperature than the supplied feed material.

III. Claim 6: A method of producing alkylamines by reacting C1-C4 alkanols with ammonia in a fixed bed in the presence of a shape-selective fixed bed catalyst, characterized in that some of the feed material in liquid form is introduced into the reactor in such a way that evaporation takes place on the fixed catalyst bed.

**Supplemental Box**

(To be used when the space in any of the preceding boxes is not sufficient)

Continuation of: IV.

IV. Claim 7: A method of producing alkylamines by reacting C1-C4 alkanols with ammonia in a fixed bed in the presence of a shape-selective fixed-bed catalyst, characterized in that the fixed catalyst bed is additionally supplied with a heat-transfer medium that is inert to the reaction products and the feed material and does not significantly influence the activity and selectivity of the catalyst.

The reasons for this are as follows:

In light of the documents cited in the application and in the search report, EP-A-0 534 195 (D1) and EP-A-0 763 519 (D2), the problem addressed by the application can be defined as that of providing improved methods and reactors for producing alkylamines by reacting alkanols with ammonia in the fixed bed. In order to solve this problem, the applicant provides four different methods that are intended to ensure better heat transfer of the reaction and thereby more advantageous product distribution and lower expenditure on apparatus. The solutions proposed in these four different methods are characterized by very different technical features: 1. coolant pipes in the fixed bed, 2. feed location for the feed material in the fixed bed, 3. evaporation of the feed material in liquid form on the catalyst, and 4. additional inert heat-transfer medium, and therefore do not have a common technical feature that links the different methods. Since the problem of heat transfer and its effect in the production of alkylamines by reacting C1-C4 alkanols with ammonia in a fixed bed in the

**Supplemental Box**

(To be used when the space in any of the preceding boxes is not sufficient)

Continuation of: IV.

presence of a shape-selective fixed-bed catalyst are also known (see D1, in particular column 1, line 21 to column 4, line 18; claims 1 to 11 and 20, and figures 1 and 2), the different methods are also not linked by a previously unknown problem to be solved.

The aforementioned groups of claims therefore lack unity of invention under PCT Rule 13.1 and 13.2 both in terms of the special technical features and in terms of the problems solved.

The international search has been carried out for all the aforementioned inventions.

In response to the request to limit the claims and/or pay additional fees under PCT Rule 68.2, the applicant opted to pay all additional examination fees. This written report therefore includes all the inventions claimed in the present application.

**V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement****1. Statement**

Novelty (N)	Claims	1-10	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	6, 9, 10	YES
	Claims	1-5, 7, 8	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-10	YES
	Claims		NO

**2. Citations and explanations**

This report makes reference to the following documents:

D1: EP 0 534 195

D2: EP 0 763 519

**1. Invention I (claims 1-4, 9 and 10)****1.1 Novelty**

The method claimed in claim 1 of the present application and the reactor according to claim 4 differ from the method and reactor described in D1 in that a shape-selective catalyst is used in the method and the reactor contains a shape-selective catalyst. The subject matter of claims 1 to 4, 9 and 10 is therefore novel within the meaning of PCT Article 33(2).

**1.2 Inventive step**

The subject matter of claims 1 to 4 does not involve an inventive step within the meaning of PCT Article 33(3).

The method according to claim 1 and the reactor according to claim 4 differ from the method and reactor disclosed in D1 merely in that a shape-selective catalyst is used in the method and the reactor contains a shape-selective

catalyst. The use of shape-selective instead of amorphous catalysts for improving the reaction process in chemical reactions is considered a conventional measure for a person skilled in the art, in particular in the present method because a person skilled in the art is already familiar with the use of form-selective catalysts of this type in the production of alkylamines from alkanols and ammonia (see, for example, D2).

The selection of boiling water cooling as the cooling method and the selection of the pressure in the coolant and in the fixed catalyst bed in claims 2 and 3 lie within the scope of what a person skilled in the art routinely does on the basis of familiar considerations. The subject matter of claims 2 and 3 therefore also does not involve an inventive step.

The combination of features contained in dependent claims 9 and 10 with the features of claim 4, to which they refer, does not appear to be obvious from the prior art. Claims 9 and 10 therefore meet the requirements of PCT Article 33(3).

## 2. Invention 2 (claim 5)

### 2.1 Novelty

The subject matter of claim 5 is novel within the meaning of PCT Article 33(3).

### 2.2 Inventive step

The subject matter of claim 5 does not involve an inventive step within the meaning of PCT Article 33(3). In light of D2, which describes the production of methylamines by reacting methanol and ammonia in the fixed



catalyst bed with a zeolite catalyst and which can be considered the closest prior art, the problem addressed by the application can be defined as that of providing an additional method of producing alkyalamines (it should be noted that zeolite catalysts are regarded as shape-selective catalysts). To solve this problem, the applicant provides the method defined in claim 5, which method is characterized in that 30 to 90% of the feed material is fed to the fixed catalyst bed at at least one location at which there is already reacted reaction mixture which has a higher temperature than the supplied feed material. Such a process is a generally conventional standard method for improving the heat transfer in chemical reactions. The method according to claim 5 therefore does not involve an inventive step.

### 3. Invention 3 (claim 6)

#### 3.1 Novelty

The subject matter of claim 6 is novel within the meaning of PCT Article 33(2).

#### 3.2 Inventive step

The subject matter of claim 6 involves an inventive step within the meaning of PCT Article 33(3).

In light of D2, which describes the production of methylamines by reacting methanol and ammonia in the fixed catalyst bed with a zeolite catalyst and which can be considered the closest prior art, the problem addressed by the application can be defined as that of providing an additional method of producing alkylamines. To solve this problem, the applicant provides the method defined in claim 6, which method is characterized in that some of the feed material in liquid form is introduced into the reactor in such a way that evaporation takes place on the

fixed catalyst bed. Carrying out the method in this manner is not obvious from the teachings of D1 and/or D2. The method according to claim 6 therefore involves an inventive step.

#### 4. Invention 4 (claims 7 and 8)

##### **4.1 Novelty**

The subject matter of claims 7 and 8 is novel within the meaning of PCT Article 33(2).

##### **4.2 Inventive step**

The present application fails to meet the requirements of PCT Article 33(1) because the subject matter of claims 7 and 8 does not involve an inventive step within the meaning of PCT Article 33(3).

Claims 7 and 8 relate to a method of producing alkyalamines by reacting alkanols with ammonia in the fixed bed, an additional **inert** heat-transfer medium (for example, water) being fed to the fixed bed via the reactor feed inlet. The addition of **inert** compounds such as water or water vapor for improving heat dissipation in chemical processes is a routine measure for a person skilled in the art. The method according to claims 7 and 8 therefore does not involve an inventive step.

**Rec'd PCT/PTO 25 MAY 2005**  
**VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM**  
**GEBIET DES PATENTWESENS**

**PCT**

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT**

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

**REC'D 23 FEB 2005**

**PCT**

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts <b>B02/0592PC</b>	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/PEA/416)	
Internationales Aktenzeichen <b>PCT/EP 03/13170</b>	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) <b>24.11.2003</b>	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) <b>26.11.2002</b>
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK <b>C07C209/16</b>		
Anmelder <b>BASF AKTIENGESELLSCHAFT et al</b>		

1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
2. Dieser **BERICHT** umfaßt insgesamt 8 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.
- ☒ Außerdem liegen dem Bericht **ANLAGEN** bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).
- Diese Anlagen umfassen insgesamt 2 Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:
- I ☒ Grundlage des Bescheids
  - II ☐ Priorität
  - III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
  - IV ☒ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
  - V ☒ Begründete Feststellung nach Regel 66.2 a)ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
  - VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
  - VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
  - VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags  <b>24.11.2003</b>	Datum der Fertigstellung dieses Berichts  <b>23.02.2005</b>
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde  <div style="display: flex; align-items: center;"> <div>             Europäisches Patentamt - P.B. 5818 Patentlaan 2              NL-2280 HV Rijswijk - Pays Bas              Tel. +31 70 340 - 2040 Tx: 31 651 epo nl              Fax: +31 70 340 - 3016           </div> </div>	Bevollmächtigter Bediensteter  <b>Zervas, B</b>  Tel. +31 70 340-3667



**I. Grundlage des Berichts**

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):

**Beschreibung, Seiten**

1-8 in der ursprünglich eingereichten Fassung

**Ansprüche, Nr.**

1-10 eingegangen am 21.01.2005 mit Schreiben vom 21.01.2005

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um:

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung, Seiten:
- ☐ Ansprüche, Nr.:
- ☐ Zeichnungen, Blatt:

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

*(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen.)*

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

**IV. Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung**

1. Auf die Aufforderung zur Einschränkung der Ansprüche oder zur Zahlung zusätzlicher Gebühren hat der Anmelder:
  - ☐ die Ansprüche eingeschränkt.
  - ☒ zusätzliche Gebühren entrichtet.
  - ☐ zusätzliche Gebühren unter Widerspruch entrichtet.
  - ☐ weder die Ansprüche eingeschränkt noch zusätzliche Gebühren entrichtet.
2. ☐ Die Behörde hat festgestellt, daß das Erfordernis der Einheitlichkeit der Erfindung nicht erfüllt ist, und hat gemäß Regel 68.1 beschlossen, den Anmelder nicht zur Einschränkung der Ansprüche oder zur Zahlung zusätzlicher Gebühren aufzufordern.
3. Die Behörde ist der Auffassung, daß das Erfordernis der Einheitlichkeit der Erfindung nach den Regeln 13.1, 13.2 und 13.3
  - ☐ erfüllt ist.
  - ☐ aus folgenden Gründen nicht erfüllt ist:
4. Daher wurde zur Erstellung dieses Berichts eine internationale vorläufige Prüfung für folgende Teile der internationalen Anmeldung durchgeführt:
  - ☒ alle Teile.
  - ☐ die Teile, die sich auf die Ansprüche Nr. beziehen.

**V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

- |                                |   |
|--------------------------------|---|
| 1. Feststellung                |   |
| Neuheit (N)                    | Ja: Ansprüche 1-10<br>Nein: Ansprüche           |
| Erfinderische Tätigkeit (IS)   | Ja: Ansprüche 6,9,10<br>Nein: Ansprüche 1-5,7,8 |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) | Ja: Ansprüche: 1-10<br>Nein: Ansprüche:         |

2. Unterlagen und Erklärungen:

**siehe Beiblatt**

**Zu Punkt IV**

**Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung**

Diese Behörde hat festgestellt, daß die internationale Anmeldung mehrere Erfindungen oder Gruppen von Erfindungen enthält, die nicht durch eine einzige allgemeine erfinderische Idee verbunden sind (Regel 13.1 PCT), nämlich:

I. Ansprüche 1-4,9,10: Ein Verfahren und ein Reaktor zur Herstellung von Alkylaminen durch Umsetzung von C1-C4-Alkanolen mit Ammoniak in einem Festbett in Gegenwart eines formselektiven Festbettkatalysators, dadurch gekennzeichnet, daß das Festbett als einziges zusammenhängendes Festbett vorliegt und innerhalb dieses Festbettes Rohre verlaufen durch die Kühlmittel geleitet werden um die Temperatur des Festbettes zu regeln.

II. Anspruch 5: Ein Verfahren zur Herstellung von Alkylaminen durch Umsetzung von C1-C4-Alkanolen mit Ammoniak in einem Festbett in Gegenwart eines formselektiven Festbettkatalysators, dadurch gekennzeichnet, daß ein Teil der Edukte dem Festbett an einer Stelle zugeführt wird an der bereits umgesetztes Reaktionsgemisch, welches eine höhere Temperatur als die zugeführten Edukte aufweist, vorliegt.

III. Anspruch 6: Ein Verfahren zur Herstellung von Alkylaminen durch Umsetzung von C1-C4-Alkanolen mit Ammoniak in einem Festbett in Gegenwart eines formselektiven Festbettkatalysators, dadurch gekennzeichnet, daß ein Teil der Edukte in flüssiger Form so in den Reaktor eingeführt wird, daß eine Verdampfung auf dem Katalysator-Festbett stattfindet.

IV. Anspruch 7: Ein Verfahren zur Herstellung von Alkylaminen durch Umsetzung von C1-C4-Alkanolen mit Ammoniak in einem Festbett in Gegenwart eines formselektiven Festbettkatalysators; dadurch gekennzeichnet, daß dem Katalysator-Festbett zusätzlich ein Wärmeträgermedium, das gegenüber den Reaktionsprodukten und Edukten inert ist und die Aktivität und Selektivität des Katalysators nicht wesentlich beeinflußt.

Die Gründe dafür sind die folgenden:

Im Hinblick auf die in der Anmeldung und im Recherchenbericht genannten Dokumente EP-A-0 534 195 (D1) und EP-A-0 763 519 (D2) läßt sich die der Anmeldung zugrunde liegende Aufgabe als Bereitstellung von verbesserten Verfahren und Reaktoren zur Herstellung von Alkylaminen durch Umsetzung von Alkanolen mit Ammoniak im

Festbett definieren. Zur Lösung dieser Aufgabe stellt die Anmelderin vier verschiedene Verfahren bereit, welche eine bessere Wärmeführung der Reaktion und dadurch eine vorteilhaftere Produktverteilung und einen geringeren apparativen Aufwand gewährleisten sollen. Die in diesen vier verschiedenen Verfahren vorgeschlagenen Lösungen sind durch gänzlich verschiedene technische Merkmale charakterisiert: 1. Kühlmittelrohre im Festbett, 2. Zuführungsort der Edukte im Festbett, 3. Verdampfung der Edukte in flüssiger Form auf dem Katalysator und 4. zusätzliches inertes Wärmeträgermedium und weisen somit kein gemeinsames technisches Merkmal auf das die unterschiedlichen Verfahren verbindet. Da auch das Problem der Wärmeführung und seine Auswirkung bei der Herstellung von Alkylaminen durch Umsetzung von C1-C4-Alkanolen mit Ammoniak in einem Festbett in Gegenwart eines formselektiven Festbettkatalysators bekannt ist (siehe Dokument D1, insbesondere Spalte 1, Zeile 21 bis Spalte 4, Zeile 18; Ansprüche 1 bis 11 und 20 und Abbildungen 1 und 2), besteht weiterhin keine Verbindung zwischen den verschiedenen Verfahren, die auf eine bisher unbekannte zu lösende Aufgabe zurückzuführen ist. Somit liegt weder hinsichtlich der besonderen technischen Merkmale noch hinsichtlich der gelösten Probleme zwischen den genannten Gruppen von Ansprüchen Einheitlichkeit der Erfindung nach Regeln 13.1 und 13.2 PCT vor.

Die internationale Recherche wurde für alle oben genannten Erfindungen durchgeführt.

Auf die Aufforderung zur Einschränkung der Ansprüche und/oder der Zahlung zusätzlicher Gebühren gemäß Regel 68.2 PCT hat die Anmelderin mit der Zahlung aller zusätzlichen Prüfungsgebühren reagiert. Dieser schriftliche Bescheid umfaßt daher alle in der vorliegenden Anmeldung beanspruchten Erfindungen.

#### **Zu Punkt V**

**Begründete Feststellung hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:

D1: EP 0 534 195

D2: EP 0 763 519

## **1. Erfindung 1 (Ansprüche 1-4, 9 und 10)**

### **1.1 Neuheit**

Das in Anspruch 1 der vorliegenden Anmeldung beanspruchte Verfahren und der Reaktor gemäss Anspruch 4 unterscheiden sich von dem in D1 beschriebenen Verfahren und Reaktor dadurch, dass ein formselektiver Katalysator in das Verfahren eingesetzt wird bzw. der Reaktor einen formselektiven Katalysator enthält. Der Gegenstand der Ansprüche 1 - 4, 9 und 10 ist somit neu im Sinne von Artikel 33(2) PCT.

### **1.2 Erfinderische Tätigkeit**

Der Gegenstand der Ansprüche 1 bis 4 beruht nicht auf einer erfinderischen Tätigkeit im Sinne von Artikel 33(3) PCT.

Das Verfahren gemäss Anspruch 1 und der Reaktor gemäss Anspruch 4 unterscheiden sich von dem in D1 bereits offenbarten Verfahren und Reaktor lediglich dadurch, dass ein formselektiver Katalysator in das Verfahren eingesetzt wird bzw. der Reaktor einen formselektiven Katalysator enthält. Die Verwendung von formselektiven anstelle von amorphen Katalysatoren zur Verbesserung der Reaktionsführung bei chemischen Reaktionen ist als eine für den Fachmann übliche Routinemassnahme anzusehen, insbesondere bei dem vorliegenden Verfahren, da die Verwendung derartiger formselektiver Katalysatoren bei der Herstellung von Alkylaminen aus Alkanolen und Ammoniak dem Fachmann bereits geläufig ist (vgl. z.B. D2).

Die in den abhängigen Ansprüchen 2 und 3 getroffene Auswahl der Siedewasserkühlung als Kühlung und des Druckes im Kühlmittel und im Katalysator-Festbett liegen Rahmen dessen, was ein Fachmann aufgrund der ihm geläufigen Überlegungen zu tun pflegt. Folglich liegt auch dem Gegenstand der Ansprüche 2 und 3 keine erfinderische Tätigkeit zugrunde.

Die Kombination der in den abhängigen Ansprüchen 9 und 10 enthaltenen Merkmale mit den Merkmalen des Anspruchs 4, auf den sie sich beziehen, erscheint im Hinblick auf den Stand der Technik nicht naheliegend. Die Ansprüche 9 und 10 erfüllen somit die Erfordernisse des Artikels 33(3) PCT.

## **2. Erfindung 2 (Anspruch 5)**

### **2.1 Neuheit**



Der Gegenstand des Anspruchs 5 ist neu im Sinne von Artikel 33(3) PCT.

## **2.2 Erfinderische Tätigkeit**

Der Gegenstand des Anspruchs 5 beruht nicht auf einer erfinderischen Tätigkeit im Sinne von Artikel 33(3) PCT.

Im Hinblick auf Dokument D2, das die Herstellung von Methylaminen durch Umsetzung von Methanol und Ammoniak im Katalysator-Festbett mit einem Zeolithkatalysator beschreibt und das als nächstliegender Stand der Technik angesehen werden kann, läßt sich die der Anmeldung zu Grunde liegende Aufgabe als Bereitstellung eines weiteren Verfahrens zur Herstellung von Alkylaminen definieren ( Es sei darauf hingewiesen, dass Zeolithkatalysatoren als formselektive Katalysatoren angesehen werden). Zur Lösung dieses Verfahrens stellt die Anmelderin das in Anspruch 5 definierte Verfahren bereit, das dadurch gekennzeichnet ist, daß 30 bis 90 % der Edukte dem Katalysator-Festbett an mindestens einer Stelle zugeführt wird an der bereits umgesetztes Reaktionsgemisch welches eine höhere Temperatur als die zugeführten Edukte aufweist, vorliegt. Eine solche Vorgehensweise ist eine allgemein übliche Standardmethode zur Verbesserung der Wärmeübertragung bei chemischen Reaktionen. Daher unterliegt dem Verfahren gemäß Anspruch 5 keine erfinderische Tätigkeit.

## **3. Erfindung 3 (Anspruch 6)**

### **3.1 Neuheit**

Der Gegenstand des Anspruchs 6 ist neu im Sinne von Artikel 33(2) PCT.

### **3.2 Erfinderische Tätigkeit**

Der Gegenstand des Anspruchs 6 beruht weiterhin auf einer erfinderischen Tätigkeit im Sinne von Artikel 33(3) PCT.

Im Hinblick auf Dokument D2, das die Herstellung von Methylaminen durch Umsetzung von Methanol und Ammoniak im Katalysator-Festbett mit einem Zeolithkatalysator beschreibt und das als nächstliegender Stand der Technik angesehen werden kann, läßt sich die der Anmeldung zu Grunde liegende Aufgabe als Bereitstellung eines weiteren Verfahrens zur Herstellung von Alkylaminen definieren. Zur Lösung dieses Verfahrens stellt die Anmelderin das in Anspruch 6 definierte Verfahren bereit, das dadurch gekennzeichnet ist, daß ein Teil der Edukte in flüssiger Form so in den Reaktor eingeführt wird, daß eine Verdampfung auf dem Katalysator-Festbett stattfindet. Eine derartige Verfahrensführung wird durch die Lehre von D1 und/oder D2 nicht nahegelegt. Somit beruht das Verfahren gemäß Anspruch 6 auf einer

erfinderischen Tätigkeit.

#### **4. Erfindung 4 (Ansprüche 7 und 8)**

##### **4.1 Neuheit**

Der Gegenstand der Ansprüche 7 und 8 ist neu im Sinne von Artikel 33(2) PCT.

##### **4.2 Erfinderische Tätigkeit**

Die vorliegende Anmeldung erfüllt nicht die Erfordernisse des Artikels 33(1) PCT, weil der Gegenstand des Ansprüche 7 und 8 nicht auf einer erfinderischen Tätigkeit im Sinne von Artikel 33(3) PCT beruht.

Die Ansprüche 7 und 8 betreffen ein Verfahren zur Herstellung von Alkylaminen durch Umsetzung von Alkanolen mit Ammoniak im Festbett, bei welchem dem Festbett ein zusätzliches **inertes** Wärmeträgermedium (z.B. Wasser) über den Reaktorzulauf zugeführt wird. Die Zugabe von **inerten** Verbindungen wie Wasser oder Wasserdampf zur Verbesserung der Wärmeabfuhr bei chemischen Prozessen ist eine dem Fachmann geläufige Routinemaßnahme. Dem Verfahren gemäß den Ansprüchen 7 und 8 unterliegt somit keine erfinderische Tätigkeit.

- 1 -

**Geänderte Patentansprüche**

1. Kontinuierliches Verfahren zur Herstellung von Alkylaminen durch Umsetzung von  $C_{1-4}$ -Alkanolen mit Ammoniak in der Gasphase in Gegenwart eines formselektiven Festbettkatalysators in einem gekühlten Reaktor, dadurch gekennzeichnet, dass der formselektive Festbettkatalysator im Reaktor in einem einzigen zusammenhängenden Festbett vorliegt und innerhalb des Festbettes Rohre verlaufen, durch die Kühlmittel geleitet werden, um die Temperatur des Festbettes zu regeln.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Kühlung durch Siedewasserkühlung erfolgt.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass der Druck im Kühlmittel 40 bis 220 bar beträgt und der Druck im Katalysator-Festbett 10 bis 50 bar beträgt.
4. Reaktor zur Umsetzung von  $C_{1-4}$ -Alkanolen mit Ammoniak in der Gasphase zur Herstellung von Alkylaminen, enthaltend einen formselektiven Festbettkatalysator, dadurch gekennzeichnet, dass der Festbettkatalysator im Reaktor in einem einzigen zusammenhängenden Festbett vorliegt und innerhalb des Festbettes Rohre verlaufen, durch die ein Kühlmittel geleitet werden kann.
5. Kontinuierliches Verfahren zur Herstellung von Alkylaminen durch Umsetzung von  $C_{1-4}$ -Alkanolen mit Ammoniak in der Gasphase in Gegenwart eines formselektiven Festbettkatalysators in einem Reaktor, dadurch gekennzeichnet, dass 30 - 90% der in den Reaktor eingeführten  $C_{1-4}$ -Alkanole, des Ammoniaks oder von Gemischen davon dem Katalysator-Festbett an mindestens einer Stelle zugeführt wird, an der ein bereits umgesetztes Reaktionsgemisch aus  $C_{1-4}$ -Alkanolen und Ammoniak vorliegt, das eine höhere Temperatur als die zugeführten  $C_{1-4}$ -Alkanole, Ammoniak oder Gemische davon aufweist.
6. Kontinuierliches Verfahren zur Herstellung von Alkylaminen durch Umsetzung von  $C_{1-4}$ -Alkanolen mit Ammoniak in der Gasphase in Gegenwart eines formselektiven Festbettkatalysators in einem Reaktor, dadurch gekennzeichnet,

- 2 -

net, dass ein Teil der  $C_{1-4}$ -Alkanole, des Ammoniaks oder von Gemischen davon in flüssiger Form so in den Reaktor eingeführt wird, dass eine Verdampfung auf dem Katalysator-Festbett stattfindet.

- 5    7.    Kontinuierliches Verfahren zur Herstellung von Alkylaminen durch Umsetzung von  $C_{1-4}$ -Alkanolen mit Ammoniak in der Gasphase in Gegenwart eines formselektiven Festbettkatalysators in einem Reaktor, dadurch gekennzeichnet, dass dem Katalysator-Festbett über den Reaktorzulauf zusätzlich ein Wärmeträgermedium zugeführt wird, das gegenüber den  $C_{1-4}$ -Alkanolen und
- 10    Ammoniak und den Reaktionsprodukten inert ist und/oder die Aktivität und Selektivität des Katalysators nicht wesentlich beeinflusst.
8.    Verfahren nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, dass das Wärmeträgermedium Wasser ist oder enthält.
- 15    9.    Verfahren nach einem der Ansprüche 5 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass es in einem Reaktor gemäß Anspruch 4 durchgeführt wird.
- 20    10.    Verfahren nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, dass die in den Reaktor eingeführten  $C_{1-4}$ -Alkanole, Ammoniaks oder Gemische davon radial zur Längsachse des Reaktors geführt werden.